



JP9118520

Biblio



METHOD FOR CONTROLLING PORE CHARACTERISTIC OF ALUMINA-BASE COMPOSITE METAL OXIDE AND PRODUCTION OF ALUMINA-BASE COMPOSITE METAL OXIDE

Patent Number: JP9118520
Publication date: 1997-05-06
Inventor(s): SHIBAZAKI MASAHIITO; OTAKE NOBUO; IMAYOSHI KAORI; SAIKI AKIRA
Applicant(s): TONEN CORP
Requested Patent: ☐ JP9118520
Application Number: JP19950300427 19951026
Priority Number(s):
IPC Classification: C01F7/02; B01J21/12; B01J32/00; B01J35/10
EC Classification:
Equivalents:

Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To control the pore characteristics of an alumina-base composite metal oxide by conditions other than the conditions in the production of composite metal oxide hydrate gel particles and to produce an alumina-base composite metal oxide by applying the controlling method.

SOLUTION: When the pore characteristics of an alumina-base composite metal oxide having a structure obtd. by forming metal oxide layers on the surfaces of alumina particles are controlled, alumina-base composite metal oxide hydrate gel particles having a structure obtd. by depositing metal oxide hydrate gel on the surfaces of alumina hydrate gel particles are dispersed in an aq. ammonium salt soln. and stirred.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-118520

(43)公開日 平成9年(1997)5月6日

(51)Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 1 F 7/02			C 0 1 F 7/02	D
B 0 1 J 21/12			B 0 1 J 21/12	M
32/00			32/00	
35/10	3 0 1		35/10	3 0 1 H

審査請求 未請求 請求項の数2 F D (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平7-300427

(22)出願日 平成7年(1995)10月26日

(71)出願人 390022998

東燃株式会社

東京都千代田区一ツ橋1丁目1番1号

(72)発明者 芝崎 雅人

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡1丁目3番1号 東燃株式会社総合研究所内

(72)発明者 大竹 信雄

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡1丁目3番1号 東燃株式会社総合研究所内

(72)発明者 今▲吉▼ かおり

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡1丁目3番1号 東燃株式会社総合研究所内

(74)代理人 弁理士 河備 健二 (外2名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 アルミナ系複合金属酸化物の細孔特性の制御方法及びアルミナ系複合金属酸化物の製造方法

(57)【要約】 (修正有)

【課題】 アルミナ系複合金属酸化物の細孔特性の制御において、複合金属酸化物の水和物ゲル粒子の製造条件以外の条件によって細孔特性を制御する方法及びその方法を用いるアルミナ系複合金属酸化物の製造方法を提供する。

【解決手段】 アルミナ粒子表面上に金属酸化物層を形成させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性を制御する方法において、アルミナ水和物ゲル粒子表面に金属酸化物水和物ゲルを沈着させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中に分散させ、攪拌処理する工程を含むことを特徴とするアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性の制御方法。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 アルミナ粒子表面に金属酸化物層を形成させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性を制御する方法において、アルミナ水和物ゲル粒子表面に金属酸化物水和物ゲルを沈着させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中に分散させ、攪拌処理する工程を含むことを特徴とするアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性の制御方法。

【請求項2】 アルミナ粒子表面に金属酸化物層を形成させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物を製造する方法において、水溶液中において酸性アルミニウム化合物と塩基性化合物を反応させることにより、アルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液を生成させる工程と、このアルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液に水溶性金属化合物の水溶液を添加混合してアルミナ水和物ゲル粒子表面に金属酸化物水和物ゲルを沈着させる工程と、このアルミナ水和物ゲル粒子表面に金属酸化物水和物ゲルが沈着した構造のゲル粒子を含む水溶液を40～80℃に昇温させ、この温度に保持して熟成する工程と、この熟成工程で得られた水溶液からそれに含まれるゲル粒子を分離する工程と、この分離されたゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中に分散させ、攪拌処理する工程と、この攪拌処理されたゲル粒子をアンモニウム塩水溶液から分離する工程と、この分離されたゲル粒子を水洗する工程と、この水洗されたゲル粒子を乾燥し、必要に応じて焼成する工程からなることを特徴とするアルミナ系複合酸化物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、アルミナを核とし、その表面に金属酸化物層を形成させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性制御方法及び該アルミナ系複合金属酸化物の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】シリカーアルミナ等のアルミナ系複合金属酸化物は、炭化水素の水素化処理用触媒を初めとした各種の触媒を調製するための触媒担体として利用されている。このような触媒担体においては、反応の活性や選択性を向上させるために、その細孔特性を制御することが必要となる。複合金属酸化物の細孔特性を制御するための方法としては、複合金属酸化物の水和物ゲル粒子の製造条件、例えば、アルミナ水和物ゲル粒子の生成条件や、アルミナ水和物ゲル粒子に、シリカ等の金属酸化物の水和物ゲルを複合化させる際のpH条件や温度条件をコントロールする方法（特開昭59-116121号）等が採用されている。しかしながら、このような複合金属酸化物の水和物ゲル粒子製造条件による細孔特性の制御には限界があり、その水和物ゲル粒子の製造条件以外

の条件によっても細孔特性を制御し得る方法が開発されれば、複合金属酸化物の細孔特性の制御が一層容易になることは明かである。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、アルミナ系複合金属酸化物の細孔特性の制御において、複合金属酸化物の水和物ゲル粒子の製造条件以外の条件によって細孔特性を制御する方法及びその方法を用いるアルミナ系複合金属酸化物の製造方法を提供することをその課題とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、本発明を完成するに至った。即ち、本発明によれば、アルミナ粒子表面上に金属酸化物層を形成させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性を制御する方法において、アルミナ水和物ゲル粒子表面に金属酸化物水和物ゲルを沈着させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中に分散させ、攪拌処理する工程を含むことを特徴とするアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性の制御方法が提供される。また、本発明によれば、アルミナ粒子表面に金属酸化物を形成させた構造を有するアルミナ系複合金属酸化物の製造方法において、水溶液中において酸性アルミニウム化合物と塩基性化合物を反応させることにより、アルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液を生成させる工程と、このアルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液に水溶性金属化合物の水溶液を添加混合してアルミナ水和物ゲル粒子表面に金属酸化物水和物ゲルを沈着させる工程と、このアルミナ水和物粒子表面に金属酸化物水和物ゲルが沈着した構造のゲル粒子を含む水溶液を40～80℃に昇温させ、この温度に保持して熟成する工程と、この熟成工程で得られた水溶液からそれに含まれるゲル粒子を分離する工程と、この分離されたゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中に分散させ、攪拌処理する工程と、この攪拌処理されたゲル粒子を水溶液から分離する工程と、この分離されたゲル粒子を水洗する工程と、この水洗されたゲル粒子を乾燥し、必要に応じて焼成する工程からなることを特徴とするアルミナ系複合酸化物粒子の製造方法が提供される。

【0005】

【発明の実施の形態】本発明において、細孔特性制御対象とするアルミナ系複合金属酸化物（以下、単に複合金属酸化物とも言う）は、その構成成分として、アルミナと少なくとも1種の他の金属酸化物を含有するものである。このような金属酸化物としては、シリカ、ボリア、マグネシア、カルシア、ジルコニア、チタニア、ハフニア等が挙げられる。この複合金属酸化物において、アルミナの含有量は50～95重量%、好ましくは70～90重量%であり、他の金属酸化物の含有量は5～50重量%、好ましくは10～30重量%である。このような

複合金属酸化物は、炭化水素油の水素化処理用触媒における触媒担体や、流動接触分解(FCC)触媒用添加成分、固体酸触媒等として好適のものである。本発明の細孔特性制御方法は、アルミナ源及び他の金属酸化物源を用いて製造された複合金属酸化物の水和物ゲル粒子自体を処理することにより、複合金属酸化物の細孔特性を制御する方法である。この場合の細孔特性には、比表面積、細孔容積、細孔容積分布が包含される。

【0006】本発明で細孔特性制御用処理対象として用いる複合金属酸化物の水和物ゲル粒子は、アルミナ水和物ゲル粒子を核とし、その表面に他の金属酸化物水和物ゲルが沈着した構造を有するものである。本発明のアルミナ系複合金属酸化物の細孔特性制御方法は、この複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム塩水溶液、たとえば、炭酸アンモニウム水溶液や炭酸水素アンモニウム水溶液、カルバミン酸アンモニウム水溶液、塩化アンモニウム水溶液、硝酸アンモニウム水溶液、硫酸アンモニウム水溶液等中に分散させ、攪拌処理する工程を含むものである。この攪拌処理の条件により、複合金属酸化物の細孔特性をコントロールすることができる。一般的には、本発明による前記アンモニウム塩水溶液中での攪拌処理を施して得られる複合金属酸化物は、その処理を施さなかった場合に比較して、比表面積及び全細孔容積が大幅に増加したものである。前記攪拌処理工程における細孔特性に影響を与える条件(因子)には、アンモニウム塩水溶液中の濃度、アンモニウム塩水溶液中の複合金属酸化物の水和物ゲル粒子の濃度、処理温度及び処理時間が包含される。以下、これらの処理因子と細孔特性との関係について述べる。

【0007】複合金属酸化物の比表面積は、処理媒体として用いるアンモニウム塩水溶液の濃度を変動させることによって制御することができ、その濃度が高くなるにつれて比表面積は増加する傾向を示すが、濃度が高くなりすぎると、比表面積は減少する傾向を示す。たとえば、水溶液中のアンモニウムイオン濃度は、一般的には、 $0.01 \sim 8 \text{ mol/l}$ 、好ましくは $0.05 \sim 6 \text{ mol/l}$ の範囲にするのがよく、これにより比表面積の高い複合金属酸化物を得ることができる。また、水溶液中の複合金属酸化物の水和物ゲル粒子の濃度が高くなるにつれて比表面積は増加する傾向を示す。水溶液中の複合金属酸化物の水和物ゲル粒子の濃度は、複合金属酸化物濃度に換算して、 $0.5 \sim 10 \text{ 重量\%}$ 、好ましくは $1 \sim 6 \text{ 重量\%}$ の範囲にするのがよい。また、水溶液中の複合金属酸化物 100 重量部 当りのアンモニウム塩のモル数、たとえば、アンモニウムイオンのモル数は、 $1 \sim 200 \text{ mol}$ 、好ましくは $3 \sim 50 \text{ mol}$ の範囲にするのがよい。さらに、比表面積は、処理時間が長くなるにつれて増加する傾向を示す。処理時間は、一般的には、 $0.5 \sim 6 \text{ 時間}$ 、好ましくは $1 \sim 4 \text{ 時間}$ である。処理温度は、 $450 \sim 1200^\circ\text{C}$ 、好ましくは 50

$0 \sim 800^\circ\text{C}$ である。

【0008】複合金属酸化物の全細孔容積は、一般的には、アンモニウムイオン濃度が 1 mol/l 以上、好ましくは $3.0 \sim 7 \text{ mol/l}$ の高アンモニウムイオン濃度の水溶液中で処理することにより大幅に増大させることができる。

【0009】複合金属酸化物の細孔分布は、一般的には、アンモニウムイオン濃度が 1 mol/l 以上、好ましくは 3.0 mol/l 以上の高アンモニウムイオン濃度の水溶液中で処理することにより、直径の大きな細孔、特に、直径 100 \AA 以上の細孔の容積割合を大幅に増大させることができる。

【0010】本発明の複合金属酸化物の細孔特性は、そのアルミナ核上に形成させる金属酸化物の含有量により変動させることができ、その金属酸化物含有量を増大させることにより、その比表面積及び全細孔容積のいずれか一方又はその両方を増大させることができる。

【0011】本発明で攪拌処理対象とするアルミナ水和物ゲル粒子表面に金属酸化物水和物ゲルを沈着させた構造を有する複合金属酸化物の水和物ゲル粒子は、従来公知の方法に従って得ることができる。このようなゲル粒子を得るには、まず、水溶液中において酸性アルミニウム化合物に塩基性化合物を反応させて、アルミナ水和物の沈殿(アルミナヒドロゲル)を生成させる。酸性アルミニウム化合物としては、アルミニウムの硫酸塩、塩化物、硝酸塩等が用いられるが、好ましくは硫酸アルミニウムが用いられる。塩基性化合物としては、アンモニア水、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム等が用いられるが、好ましくはアンモニア水である。反応温度は常温 $\sim 40^\circ\text{C}$ であり、反応圧力は常圧である。

【0012】水溶液中における酸性アルミニウム化合物と塩基性化合物との反応を好ましく実施するには、あらかじめ酸性アルミニウム化合物の水溶液を充填した反応容器に対して、攪拌下において、塩基性化合物水溶液を添加し、混合する。酸性アルミニウム化合物水溶液中のアルミニウム化合物濃度は、特に制約されないが、通常、酸化アルミニウム基準で $0.5 \sim 10 \text{ 重量\%}$ 、好ましくは $1 \sim 8 \text{ 重量\%}$ である。塩基性化合物水溶液中の塩基性化合物濃度は、 $0.1 \sim 4 \text{ 規定}$ 、好ましくは $0.5 \sim 2 \text{ 規定}$ である。塩基性化合物水溶液の添加速度は、その水溶液の添加開始から添加終了までの時間(添加時間)で表わして、 $0.25 \sim 2 \text{ 時間}$ 、好ましくは $0.5 \sim 1 \text{ 時間}$ である。このようにして反応を行うことにより、アルミナ水和物ゲル粒子(アルミナ水和物の沈殿)を含む $\text{pH } 6.5 \sim 9$ 、好ましくは $7 \sim 8.5$ の水溶液を得る。これによって、複合金属酸化物製造用のアルミナ原料として好ましいアルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液を得ることができる。

【0013】次に、このようなアルミナ水和物ゲル粒子

を含む水溶液に対し、複合化させる金属酸化物に対応する水溶性金属化合物の水溶液を添加混合する。水溶性金属化合物としては、金属塩や、キレート化合物、アルコキシ化合物等が用いられる。本発明においては、金属化合物としては、ケイ素化合物の使用が好ましいが、このようなケイ素化合物としては、アルカリ金属ケイ酸塩の使用が好ましい。アルカリ金属ケイ酸塩としては、 $\text{Na}_2\text{O}:\text{SiO}_2$ のモル比が1:2~1:4の範囲にあるケイ酸ナトリウムの使用が好ましい。水溶液中の金属化合物の濃度は、5~10重量%、好ましくは6~8重量%である。前記アルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液に対する金属化合物の添加量は、最終製品である複合金属酸化物の組成に対応する量であり、複合金属酸化物中のその金属酸化物含有量が5~50重量%になるような量である。アルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液に対する水溶性金属化合物の水溶液の添加混合を好ましく行うには、アルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液に対し、水溶性金属化合物の水溶液を、1~60分、好ましくは10~30分の添加時間で添加混合させる。アルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液と水溶性金属化合物の水溶液との混合溶液は、pH6.5~9、好ましくはpH7~8.5、より好ましくはpH約8の条件に保持する。この場合、必要に応じて、鉍酸水溶液や水酸化ナトリウム水溶液等のpH調節剤を添加し、混合水溶液のpHを前記範囲に保持する。水溶性金属化合物の添加終了後、混合水溶液を加熱し、温度40~80℃、好ましくは60~75℃に昇温し、この温度に保持する。その保持時間は0.5~24時間、好ましくは1~12時間である。この操作により、アルミナ水和物ゲル粒子上に金属酸化物水和物ゲルが沈着したゲル粒子が得られる。このゲル粒子は、濾過等の固液分離手段により、液中から分離する。前記のようにして、アルミナ水和物ゲル粒子上に金属酸化物水和物ゲルが沈着した構造のゲル粒子が得られるが、このゲル粒子は、本発明により、その細孔特性を制御するために、アンモニウム塩水溶液中に分散し、攪拌処理する。この場合の一般的処理条件を示すと、アンモニウム塩水溶液として、炭酸アンモニウム水溶液を用いる場合、そのアンモニウムイオンの濃度は0.01~8モル/リットル、好ましくは0.05~6モル/リットルである。また、その炭酸アンモニウム水溶液の使用量は、複合金属酸化物の水和物ゲル粒子1g(複合金属酸化物基準)に対し、0.1~2リットル、好ましくは0.15~1リットルである。また、複合金属酸化物の水和物ゲル粒子1g(複合金属酸化物基準)当りのアンモニウムイオンは0.01~2モル、好ましくは0.03~0.5モルである。攪拌温度は、常温~60℃、好ましくは30~40℃である。攪拌時間は0.5~6時間、好ましくは1~4時間である。

【0014】前記のようにしてアンモニウム塩水溶液処理された複合金属酸化物水和物ゲル粒子は、これを濾過

等の固液分離手段により分離し、その分離されたゲル粒子をイオン交換水を用いて洗浄し、得られた水洗物を乾燥し、必要に応じて焼成する。乾燥は、酸素の存在下又は非存在下で常温~200℃の温度で行う。また、焼成は、酸素の存在下で、450~1200℃、好ましくは500~800℃で行う。このようにして、核としてのアルミナ表面上に金属酸化物層が形成した構造を有する複合金属酸化物を得ることができる。

【0015】複合金属酸化物の細孔特性を制御する場合、複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中で攪拌処理することによる方法と、複合金属酸化物水和物のゲル粒子の製造条件を変化させる方法とを組合せることが好ましい。このような方法により、複合金属酸化物の細孔特性をより一層容易にかつ細かく制御することができる。複合金属酸化物の水和物ゲル粒子の製造条件においては、比表面積は、アルミナ水和物ゲル粒子を生成させる工程において、酸性アルミニウム化合物水溶液に塩基性化合物水溶液を添加する速度を高めることによって増加させることができ、また、アルミナ水和物ゲル粒子上に金属酸化物の水和物ゲルを沈着させた複合金属酸化物の熟成温度を高めることによって増加させることができる。さらに、細孔容積分布において、直径が60Å以上、特に100Å~200Åの細孔容積の割合は、アルミナ水和物ゲル粒子を含む水溶液に水溶性金属化合物を添加する際のその添加速度を遅くすることにより増加させることができる。

【0016】本発明による複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム水溶液中で攪拌処理する工程を含む複合金属酸化物の製造方法によれば、比表面積が大きい製品を容易かつ効率よく製造することができる。

【0017】

【実施例】次に、本発明を実施例について説明する。なお、以下において示す%は重量%である。

実施例1

容積2リットルの容器に、イオン交換水700mlを投入し、これに硫酸アルミニウムを Al_2O_3 換算量で9.7gを添加し、溶液の温度を30℃に保持して攪拌して、硫酸アルミニウム水溶液(pH:3.0)を作った。次に、前記のようにして得た硫酸アルミニウム水溶液を激しく攪拌しながら、この水溶液に、1規定のアンモニア水を混合溶液のpHが8.0となるまで約0.5時間をかけて添加し(アンモニア水の添加速度:20ml/分)、白色のアルミナ水和物ゲル粒子(沈殿)を生成させた。

【0018】次に、このようにして得られたアルミナ水和物ゲル粒子を含むスラリー溶液に、攪拌下、水ガラス3号(SiO_2 含有量:29wt%)のイオン交換水溶液(SiO_2 含有量:6wt%)を、シリカ含量が10%のシリカーアルミナを得るために、 SiO_2 として1.2gとなるように、約2分をかけて添加した(添加

速度：10ml/分）。次に、溶液を30分かけて60℃に昇温し、この温度において3時間保持した。これにより、アルミナ水和物ゲル粒子の表面にシリカ水和物が沈着したゲル粒子を含むスラリー液が得られた。このスラリー溶液を濾過し、得られた濾過ケーキを、炭酸アンモニウム水溶液中に分散させ、攪拌処理した。この場合の処理条件を表1に示す。次に、前記攪拌処理されたスラリー液を濾過し、得られた濾過ケーキ上にイオン交換水を2リットル散布し、ケーキ中のアンモニウムイオン

等の残存イオンを除去した。次に、このようにして得たケーキを、120℃で15時間乾燥し、乾燥固体（シリカ含有量10重量%のシリカ-アルミナ）を得た。この乾燥固体を500℃で3時間空気中で焼成し、得られた焼成固体について、その比表面積、全細孔容積、平均細孔径、細孔分布を測定した。その結果を表1に示す。

【0019】

【表1】

項 目	実験No.						
	1	3	4	5	6	7	8
処理条件							
NH ₄ ⁺ 濃度 (mol/リットル)	0	3.13	1.3	3.0	6.7	1.3	1.3
NH ₄ ⁺ /試料 (mol/g)	0	0.037	0.37	0.25	1.8	0.37	0.37
時間 (分)	60	60	60	60	60	180	360
温度 (℃)	30	30	30	30	30	30	30
シリカ-アルミナの 細孔特性							
比表面積 (m ² /g)	180	305	343	379	342	401	424
全細孔容積 (cc/g)	0.72	1.27	1.40	1.86	2.19	1.21	1.95
平均細孔径 (Å)	160	166	158	195	256	121	184
細孔分布 (%)							
300Å +	16	8	5	4	30	4	3
300-200Å	5	7	4	2	20	1	3
200-100Å	22	23	18	49	21	2	55
100-50Å	23	31	48	30	12	39	23
50-40Å	7	12	11	5	4	25	4
40-30Å	7	10	8	4	5	16	4
30-20Å	8	6	5	4	5	10	4
20-10Å	14	2	1	2	2	2	4

【0020】実施例2

実施例1において、水ガラス3号のイオン交換水溶液の添加量を、シリカ含量が20%のシリカ-アルミナ酸化物を得るために、SiO₂として2.43gとした以外

は同様にして実験を行った。その結果を表2に示す。

【0021】

【表2】

項 目	実験No.					
	11	12	14	15	16	18
処理条件						
NH ₄ ⁺ 濃度 (mol/リットル)	0	0	1.3	1.3	3.3	6.7
NH ₄ ⁺ /試料 (mol/g)	0	0	0.082	0.33	0.33	0.33
時間 (分)	180	180	180	180	180	180
温度 (℃)	60	30	30	30	30	30
シリカ-アルミナの 細孔特性						
比表面積 (m ² /g)	212	180	297	326	470	403
全細孔容積 (cc/g)	1.35	0.78	1.59	1.83	1.74	1.53
平均細孔径 (Å)	255	173	214	224	148	152
細孔分布 (%)						
300Å +	18	17	11	9	21	35
300-200Å	20	8	11	8	26	25
200-100Å	26	26	28	38	24	10
100-50Å	14	24	33	31	9	5
50-40Å	4	6	6	5	2	5
40-30Å	5	5	5	4	3	5
30-20Å	6	4	4	4	5	5
20-10Å	3	10	2	2	11	10

【0022】前記表1及び表2における「NH₄⁺/試料」は、水溶液中のシリカ-アルミナゲル粒子濃度を、シリカ-アルミナ酸化物濃度に換算し、その1g当りのNH₄⁺モル数を示す。また、前記シリカ-アルミナに関する細孔特性は500℃焼成品についての値であり、こ

れらの物性値は以下のようにして測定されたものである。

(比表面積) 試料0.2gを200℃、1×10⁻³トールの条件下に1時間保持した後、液体窒素温度(77K)にて窒素ガスの吸着を行い、その吸着量を用いて比

表面積を求めた。その算出にはBET法を用いた。

(細孔容積)上記比表面積測定に続いて、液体窒素温度(77K)にて、窒素ガスを相対圧1.0まで吸着した後、窒素ガスの脱着を相対圧0.14まで行い、その脱着量を用いて細孔容積を求めた。その算出には、BJH法を用いた。なお、前記比表面積及び細孔容積の測定においては、直径10Å以下の微小細孔は無視されている。

【0023】

【発明の効果】本発明によれば、アルミナを核とし、その表面上にシリカ等の金属酸化物層を形成した構造のア

ルミナ含有複合金属酸化物における細孔特性を、そのアルミナ含有複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中で攪拌処理するという簡単な操作により制御することができる。また、本発明によるアルミナ含有複合金属酸化物の製造方法によれば、そのアルミナ含有複合金属酸化物の水和物ゲル粒子をアンモニウム塩水溶液中で攪拌処理する工程を含むことから、細孔特性の制御された製品を得ることができる。本発明により得られる細孔特性のコントロールされたアルミナ含有複合金属酸化物は、触媒担体や、固体酸触媒、吸着剤等として有利に利用される。

フロントページの続き

(72)発明者 ▲さい▼合 彰

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡1丁目3番1
号 東燃株式会社総合研究所内